

ODREĐJIVANJE GUSTINE NEUTRONSKOG FLUKSA PROIZVOLJNOG ENERGETSKOG SPEKTRA MERENJEM AKTIVNOSTI OZRAČENIH FOLIJA

Vladan Ljubenov, Miodrag Milošević

Institut za nuklearne nauke Vinča, NTI-150, P.P. 522, 11001 Beograd

Sadržaj – U radu je opisana procedura za određivanje gustine neutronskega fluksa u poljima sa različitim energetskim spektrima, zasnovana na primeni standardnih metoda za merenje aktivnosti ozračenih folija i paketa programa SCALE-4.4a za određivanje usrednjenih vrednosti neutronskega preseka. Procedura omogućava uključivanje karakteristika neutronskega polja u kojima se folije ozračuju, efekata rezonantnog samozaklanjanja u folijama, kao i efekata perturbacije gustine neutronskega fluksa koji unose folije i njihovi nosači. Predložena procedura je primenjena za određivanje gustine neutronskega fluksa u unutrašnjosti neutronskega filtra od bora postavljenog u centru konfiguracije RB#111 teškovođenog reaktora RB.

1. UVOD

Određjivanje gustine neutronskega fluksa tehnikama zasnovanim na ozračivanju aktivacionih folija bilo je i još uvek predstavlja važan zadatak u eksperimentalnoj fizici nuklearnih reaktora. Osnove ovih tehnika pozanate su odavno [1]-[2], a brojne verifikovane tehnike [3]-[4] i danas se široko koriste.

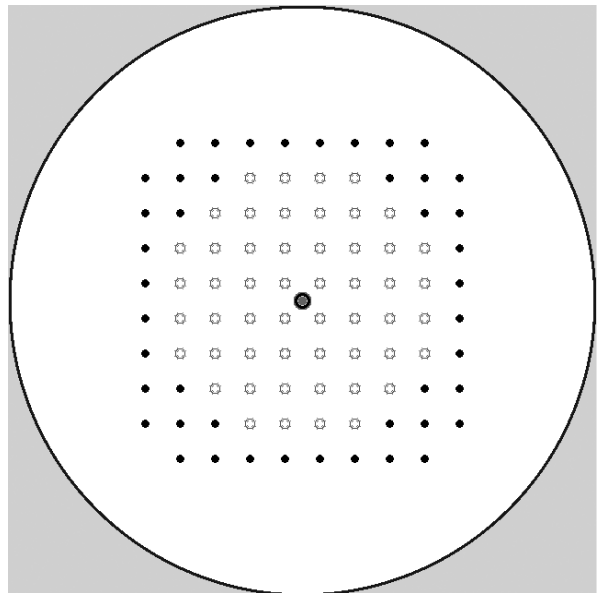
U suštini, eksperimentalno određivanje gustine neutronskega fluksa ozračivanjem folija obuhvata dve složene celine, jednu predstavlja merenje aktivnosti ozračenih folija, a drugu određivanje usrednjenog neutronskega preseka za reakciju koja je dovela do aktivacije folije. Mada je razvoj ovih celina jednako dinamičan, u ovom radu je dat samo prikaz onih tehnika merenja aktivnosti ozračenih folija koje se trenutno koriste u Institutu za nuklearne nauke u Vinči, dok je sadržaj rada posvećen opisu procedure određivanja usrednjenih neutronskega preseka u folijama. Predložena procedura u potpunosti je zasnovana na analitičkim i Monte Karlo algoritmima ugrađenim u paket programa SCALE-4.4a [5], i primenjena je za određivanje gustine neutronskega fluksa u unutrašnjosti neutronskega filtra od bora koji se koristi sa konfiguracijom RB#111 teškovođenog reaktora RB.

2. PRIKAZ KONFIGURACIJE RB#111 REAKTORA RB SA NEUTRONSKIM FILTROM OD BORA

S obzirom da su u avgustu 2002. godine gorivni elementi sa UO_2 obogaćenja 80% ^{235}U vraćeni u Rusiju, potrebe za ozračivanjem uzoraka u kalibrisanim poljima brzih neutrona zahtevale su da se formira jedna nova konfiguracija reaktora RB sa postojećim gorivnim elementima sa metalnim uranijumom obogaćenja 2% ^{235}U i 0.714% ^{235}U . Analizom mogućih konfiguracija za rad sa neutronskega filtrom (posudom) od bora, u kojoj se težilo da se ostvari što veća jačina apsorbovane neutronske doze u unutrašnjosti filtra od bora, a na drugoj strani se vodilo računa o ograničenoj količini gorivnih elemenata obogaćenja 2% ^{235}U i 0.714% ^{235}U , kao i o specifičnim aspektima sigurnosti rada reaktora RB u uslovima unošenja u jezgro reaktora uzoraka sa velikom apsorpcijom neutrona, kao što je slučaj sa posudom od bora, usvojeno je da se neutronske

filtr od bora koristi sa konfiguracijom RB#111. Horizontalni presek ove konfiguracije prikazan je na slici 1. Konfiguracija RB#111 predstavlja kritični sistem na termičke neutrone. Termičko jezgro ove konfiguracije sadrži 52 gorivna kanala (sa po 13 gorivnih elemenata obogaćenja 2% ^{235}U u svakom gorivnom kanalu) i 44 gorivna elementa sa metalnim uranijumom prirodnog obogaćenja (0.714% ^{235}U).

Jedna od primena neutronskega filtra sa borom vezana je za kalibraciju dozimetara DL-M3. Za potrebe ove kalibracije, posuda sa borom bila je postavljena na dnu vertikalnog kanala (dužine 175 cm, spoljašnjeg prečnika 63 mm i unutrašnjeg prečnika 58 mm), smeštnog u centru termičke jezgre konfiguracije RB#111.



Sl. 1. Konfiguracija reaktora RB #111 za ozračivanje ampula dozimetra DL-M3 (horizontalni presek)

3. MERENJE AKTIVNOSTI OZRAČENIH FOLIJA

Za eksperimentalno određivanje gustine neutronskega fluksa na reaktoru RB standardno se koristi postupak zasnovan na ozračivanju zlatnih folija prečnika 10 mm i mase oko 30 mg. Pri tome gustina neutronskega fluksa na mestu ozračivanja folije (ϕ), ozračene u toku vremenskog intervala (t_0) na zadatoj snazi određuje se na osnovu izmerene aktivnosti folije (A) izrazom

$$\phi = \frac{A}{\frac{mN_{Av}}{A_m} \bar{\sigma}_c [1 - \exp(-\lambda t_0)] \exp(-\lambda t_h) \frac{1}{t_m} \int_0^{t_m} \exp(-\lambda t') dt'}$$

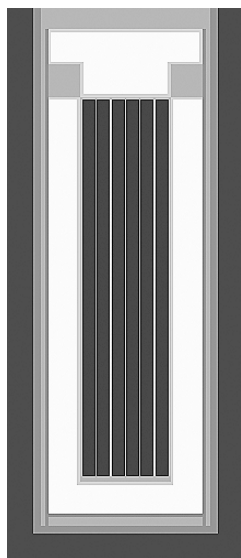
gde je t_h vreme hlađenja, t_m vreme merenja aktivnosti folije, m masa folije, N_{Av} Avogadrov broj i A_m atomska masa nuklida na kome se odvija apsorpcija neutrona. U osnovi, tačnost ovog postupka zavisi: a) od tačnosti izmerene

aktivnosti ozračene folije i b) od tačnosti određivanja usrednjenog preseka za apsorpciju neutrona u foliji na mestu ozračivanja folije,

$$\bar{\sigma}_c = \frac{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \sigma_c(E) \varphi_0(E) dE}{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \varphi_0(E) dE},$$

gde je $\varphi_0(E)$ energetski spektar gustine neutronskog fluksa na mestu ozračivanja folije.

Radi obezbedjenja potrebne tačnosti za merenje aktivnosti folije od zlata, ozračene na dnu posude sa borom koja je bila ispunjena sa 25 ampula dozimetra DL-M3 (slika 2), primenjene su tri različite merne tehnike, koje se koriste u tri različite laboratorije u Institutu u Vinči.



Sl. 2. 3D model neutronskog filtra od bora sa dozimetrima DL-M3 (vertikalni presek)

U Centru za nuklearne tehnologije i istraživanja (NTI-150) korišćena je standardna procedura zasnovana na merenju odnosa aktivnosti dve folije od zlata, jedne koja je ozračena na dnu posude od bora sa 25 ampula dozimetra DL-M3 i druge ozračene u standardnom grafitnom bloku [6] sa izvorom tipa Ra- α -Be na mestu gde je poznata vrednost gustine neutronskog fluksa. Za merenje odnosa aktivnosti dve ozračene folije od zlata korišćen je kalibrisani scintilacioni detektor sa NaI(Tl). Ovaj detektor karakteriše znatno slabija rezolucija u odnosu na moderne poluprovodničke detektora sa germanijumom, tako da je kao mera aktivnosti svake folije uzet ukupni broj impulsa u jedinici vremena ispod izmerene površine pika nuklida ^{198}Au (411.8 ± 40.5) keV.

Referentne vrednosti gustine fluksa termičkih neutrona u standardnom grafitnom bloku dobro su poznate na osnovu ranijih [6] i novih merenja [7], kao i na osnovu detaljnih proračuna [8] baziranih na primeni Monte Karlo programa MCNP-4B [9] i domaće biblioteke neutronskih preseka VMCCS [10]. U tabeli I prikazane su neperturbovane vrednosti gustine fluksa termičkih neutrona u standardnom grafitnom bloku u pozicijama u kojima se najčešće vrši ozračivanje folija.

Tabela I. *Neperturbovane vrednosti gustine fluksa termičkih neutrona u standardnom grafitnom bloku*

Rastojanje od izvora neutrona (cm)	Gustina fluksa termičkih neutrona ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) / Neodređenost (%)		
	Merenje (Ref. [6])	Merenje (Ref. [7])	Proračun (MCNP-4B) (Ref. [8])
45	$7.72 \cdot 10^3 (\pm 10)$	$7.685 \cdot 10^3 (\pm 7.5)$	$7.561 \cdot 10^3 (\pm 1.9)$
55	$5.58 \cdot 10^3 (\pm 10)$	$5.712 \cdot 10^3 (\pm 8.1)$	$5.745 \cdot 10^3 (\pm 1.7)$
65	$4.10 \cdot 10^3 (\pm 10)$	$4.031 \cdot 10^3 (\pm 8.7)$	$4.032 \cdot 10^3 (\pm 1.8)$

U kalibraciji iz 1966. godine korišćeni su rezultati merenja aktivnosti ozračivanih folija od indijuma pomoću $4\pi\beta$ brojača, kao i analitičke i semiemirijske realcije za određivanje efektivnog preseka za apsorpciju neutrona na ^{115}In i faktora depresije gustine fluksa termičkih neutrona u foliji [6]. Za potrebe kalibracije dvo-grupne raspodele gustine neutronskog fluksa, koja je obavljena nedavno [7], korišćene su folije od zlata u kadmijumskim kutijama i bez kadmijumskih kutija, dok je njihova aktivnost merena pomoću kalibrisanog poluprovodničkog detektora sa germanijumom. Neperturbovane vrednosti ukupne gustine neutronskog fluksa u standardnom grafitnom bloku date su u tabeli II. U tabeli III prikazane su vrednosti ukupne gustine neutronskog fluksa u standardnom grafitnom bloku perturbovane zlatnim folijama.

Tabela II. *Neperturbovane vrednosti ukupne gustine neutronskog fluksa u standardnom grafitnom bloku*

Rastojanje od izvora neutrona (cm)	Gustina neutronskog fluksa ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) / Neodređenost (%)	
	Merenje (Ref. [7])	Proračun (MCNP-4B) (Ref. [8])
45	$9.762 \cdot 10^3 (\pm 8.3)$	$9.738 \cdot 10^3 (\pm 2.1)$
55	$6.651 \cdot 10^3 (\pm 8.6)$	$6.692 \cdot 10^3 (\pm 1.6)$
65	$4.414 \cdot 10^3 (\pm 8.8)$	$4.404 \cdot 10^3 (\pm 1.8)$

Tabela III. *Perturbovane vrednosti ukupne gustine neutronskog fluksa (sa Au) u standardnom grafitnom bloku*

Rastojanje od izvora neutrona (cm)	Gustina neutronskog fluksa ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) / Neodređenost (%)	
	Merenje (Ref. [7])	Proračun (MCNP-4B) (Ref. [8])
45	$9.500 \cdot 10^3 (\pm 8.3)$	$9.477 \cdot 10^3 (\pm 2.1)$
55	$6.542 \cdot 10^3 (\pm 8.6)$	$6.582 \cdot 10^3 (\pm 1.6)$
65	$4.335 \cdot 10^3 (\pm 8.8)$	$4.325 \cdot 10^3 (\pm 1.8)$

U Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku (Lab-011), aktivnost iste zlatne folije izmerena je $4\pi\beta$ brojačem, a u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine

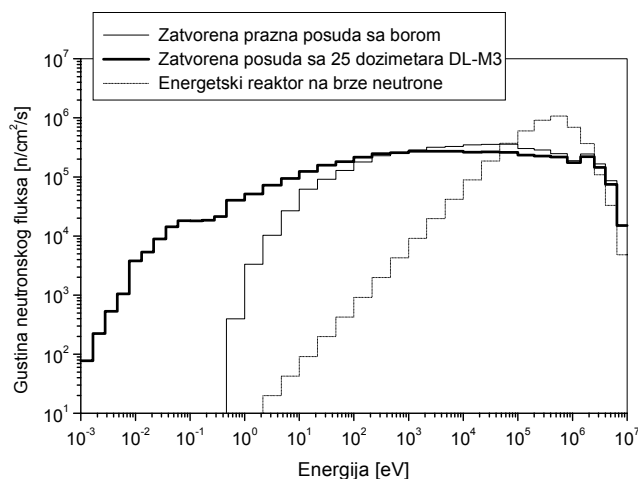
(Lab-100) kalibrisanim poluprovodničkim detektorom sa germanijumom.

4. ODREĐIVANJE USREDNJENOG PRESEKA ZA AKTIVACIJU FOLIJE

U skladu sa najnovijim dostignućima u oblasti proračuna nuklearnih reaktora u svetu, za potrebe određivanja energetskog spektra neutrona u unutrašnjosti neutronskog filtra sa borom, postavljenog u centru termičkog jezgra konfiguracije RB#111, kao i za usrednjavanje preseka za aktivaciju ozračenih folija korišćen je poznati paket računarskih programa SCALE-4.4a. Zbog istovremenog korišćenja rezultata proračuna gustine neutronskog fluksa za kalibraciju mernih kanala za praćenje snage reaktora RB i za kalibraciju dozimetara DL-M3, svi proračuni konfiguracije RB#111 izvršeni su pomoću Monte Carlo programa KENO-V.a [11] korišćenjem biblioteke neutronskih preseka sa 238 energetskih grupa [12]. Ova biblioteka je formirana korišćenjem neutronskih preseka iz evaluacije ENDF/B-V i trenutno predstavlja najbolju biblioteku neutronskih preseka u paketu programa SCALE-4.4a.

U paketu programa SCALE-4.4a za modelovanje rezonantnih procesa u jezgrima termičkih nuklearnih reaktora koristi se uprošćeni model sa jednim izolovanim gorivnim elementom kod koga se uticaj okolnih gorivnih elemenata uključuje pomoću Dankofovog faktora, tako da kontrolni modul CSAS [13] omogućava istovremeno pripremanje višegrupnih neutronskih preseka (uključujući efekte rezonantnog samozaklanjanja) i pokretanje jedno-dimenzionalnih (1D) proračuna metodom diskretnih ordinata ili tro-dimenzionalnih (3D) proračuna Monte Carlo metodom. Međutim, ovaj modul ne može da obezbedi određivanje Dankofovog faktora u složenim geometrijama ili nepravilnim rešetkama. Odstupajući od standardnih izvodenja, zasnovanih na definiciji po kojoj Dankofov faktor predstavlja verovatnoću da neutron koji napusti gorivo sa ravnomernom raspodelom po površini goriva i izotropnom raspodelom po uglu ne doživi sledeći sudar u moderatu, u domaćem programu VEGA2DAN [14] predložen je postupak u kome se Dankofov faktor određuje tako da ukupna apsorpcija neutrona u posmatranoj rezonantnoj zoni u zadatom energetskom intervalu, određena na osnovu numeričkog rešenja jednačine usporavanja neutrona u realnoj geometriji heterogenog sistema, bude jednaka apsorpciji neutrona u ekvivalentnom modelu kod koga je uticaj okoline na izdvojeni gorivni element u obliku ploče, sfere, cilindra, ili u obliku cilindrične cevi zamenjen traženim Dankofovim faktorom. Cilj ovog postupka je da se za posmatrani gorivni element, preko Dankofovog faktora ostvari očuvanje ne samo verovatnoća sudara u gorivu u odnosu na realnu geometriju, nego i efekti interferencije rezonanci različitih nuklida i efekti prostornog rezonantnog samozaklanjanja. I pored toga što je za gorivne elemente sa metalnim uranijumom obogaćenja 2% ^{235}U i 0.714% ^{235}U u konfiguraciji RB#111 (slika 1), moguće da se kombinovanjem postojećih opcija u kontrolnom modulu CSAS Dankofovi faktori odrede sa visokom tačnošću, zbog veće tačnosti u svim proračunima korišćenim u ovom radu. Dancoff-ovi faktori su određeni pomoću domaćeg programa VEGA2DAN.

Koliki uticaj na vrednost usrednjenog neutronskog preseka za apsorpciju neutrona (kao i na aktivnost folije) ima oblik energetskog spektra gustine neutronskog fluksa na mestu ozračivanja folije (slika 3) najbolje ilustruju rezultati prikazani u tabeli IV. U ovoj tabeli su prikazane vrednosti usrednjenog preseka za apsorpciju neutrona na nuklidu ^{197}Au u zlatnim folijama ozračenim na dnu prazne zatvorene posude sa borom i na dnu iste posude sa 25 ampula dozimetra DL-M3. Prikazani rezultati su dobijeni korišćenjem Monte Carlo programa KENO-V.a, 238-grupne biblioteke neutronskih preseka i detaljnih modela posude sa borom (bez ampula i sa ampulama) i konfiguracije RB#111 reaktora RB (slike 1 i 2).



Sl. 3. Energetski spektri neutrona u unutrašnjosti posude sa borom za konfiguraciju RB#111 reaktora RB

Tabela IV. Usrednjene vrednosti preseka za apsorpciju neutrona na nuklidu ^{197}Au u zlatnim folijama prečnika 1 cm i mase 30 mg ozračenim na dnu posude od bora bez ampula i sa ampulama dozimetra DL-M3

Pozicija folije od zlata	Usrednjena vrednost preseka za apsorpciju neutrona na nuklidu ^{197}Au u zlatnoj foliji prečnika 1 cm i mase 30 mg (10^{-28} m^2)
Na dnu prazne i zatvorene posude sa borom	3.3 ± 0.2
Na dnu posude sa borom ispunjene sa 25 ampula dozimetra DL-M3	9.6 ± 0.9

5. REZULTATI

Dobijeni rezultati za aktivnost folije od zlata u trenutku prestanka ozračivanja na dnu posude sa borom, u kojoj je istovremeno bilo smešteno 25 ampula dozimetra DL-M3, kao i vrednosti ukupne gustine neutronskog fluksa dobijene na osnovu izmerenih aktivnosti i vrednosti usrednjenog preseka za nuklid ^{197}Au od $9.6 \cdot 10^{-24} \text{ m}^2$, dati su u tabeli V.

Tabela V. Aktivnost Au folije ozračene na dnu posude sa borom ispunjene sa 25 ampula dozimetra DL-M3 u konfiguraciji RB#111 tokom 30 minuta na snazi reaktora RB od 30 W i gustina neutronskog fluksa u foliji

Postupak	Aktivnost Au folije na kraju ozračivanja (Bq)	Gustina neutronskog fluksa u Au foliji ($10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)
238-grupni KENO-V.a proračun (snaga reaktora 30 W), NTI-150	707 ± 17	1.44 ± 0.03
Relativno merenje u odnosu na kalibrisano polje neutrona u grafitnom bloku (snaga 24.8 V, kanal K5), NTI-150	688 ± 35	1.40 ± 0.10
Merjenje $4\pi\beta$ brojačem (snaga 24.8 V, kanal K5), Lab-011 ¹	692.8 ± 0.5	1.41 ± 0.03
Merenje poluprovodničkim Ge detektorom (snaga 24.8 V, kanal K5), Lab-100 ²	739 ± 37	1.51 ± 0.10

6. ZAKLJUČAK

Prikazani rezultati pokazuju mogućnost pouzdanog određivanja gustine neutronskog fluksa u poljima sa proizvoljnim energetske spektrum neutrona na bazi aktivacije folija. Postupak je baziran na detaljnom modelovanju sistema u kome se vrši ozračivanje i procesa apsorpcije neutrona, što omogućava precizno određivanje usrednjenog preseka za aktivaciju materijala folije neutronima. Postignuto je dobro slaganje između sva tri merenja aktivnosti folije, pri čemu su postojeće razlike između opisanih merenja manje od njihovih mernih nesigurnosti.

ZAHVALNICA

Ovaj rad sadrži rezultate istraživanja finansiranih od strane Ministarstva za nauku, tehnologije i razvoj Republike Srbije (Projekat br. 1958, "Transportni procesi u fisijom i fuzionim sistemima").

REFERENCE

- [1] K.H. Beckurts, K. Wirtz, *Neutron Physics*, Springer-Verlag, Berlin (1964).
- [2] A.E. Profio, *Experimental Reactor Physics*, John Wiley & Sons, Inc. (1976).
- [3] "Neutron Standards and Flux Normalization," Proc. of the Symp., Argonne National Laboratory, October 21-23, 1970; A.B. Smith, Coord., AEC Symposium Series No. 23, CONF-701002, National Technical Information Service, Springfield, Va. (1970).
- [4] "Neutron Fluence Measurements," Technical Report Series No. 107, International Atomic Energy Agency, Vienna (1970).

¹ Merenja su obavili D.Novković, A.Kandić, I.Vukanac i L.Nadjdžerđ iz Laboratorije za nuklearnu i plazma fiziku, Lab-011

² Merenja su obavili S.Pavlović i R.Pavlović iz Laboratorije za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Lab-100

- [5] "SCALE-4.4a: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation," NUREG-CR-0200, Rev.6, Oak Ridge National Laboratory (March 2000).
- [6] M. Ivković, Z. Zdravković, O. Šotić, "A Standard Graphite Block," *Bulletin of the Boris Kidrič Institute of Nuclear Sciences*, 17, pp. 99-114 (1966).
- [7] V. Ljubenov, M. Milošević, "Standard Neutron Fields in Graphite Prism with Ra- α -Be Source," *Nuklearna Tehnologija* (Journal of the Yugoslav Nuclear Society), Vol. XVI (1), pp. 10-15 (2001).
- [8] V. Ljubenov, "Standardizacija polja neutrona u grafitnom bloku sa Ra- α -Be izvorom," *Magistarska teza*, Elektrotehnički fakultet Univerziteta u Beogradu (2001).
- [9] J.F. Briesmeister, Editor, "MCNPTM – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C," LA-13709-M Report, Los Alamos National Laboratory (April 2000).
- [10] M. Milošević, "The VMCCS Data Library for MCNPTM," *Vinča Institute of Nuclear Sciences Bulletin*, Vol.3, No.1-4, pp.10-14 (1998).
- [11] L.M. Petrie, N.F. Landers, "KENO V.a: An Improved Monte Carlo Criticality Program with Uupergrouping," NUREG-CR-0200, Rev. 6, Vol. 2, Section F11, Oak Ridge National Laboratory (March 2000).
- [12] W.C. Jordan, S.M. Bowman, "Scale Cross-Section Libraries," NUREG-CR-0200, Rev. 6, Vol. 3, Section M4, Oak Ridge National Laboratory (March 2000).
- [13] N.F.Landers and L.M.Petrie, "CSAS: Control Module for Enhanced Criticality Safety Analysis Sequences," NUREG/CR-0200, Rev. 6, Vol. 1, Sections C4, Oak Ridge National Laboratory (March 2000).
- [14] M. Milošević, "An Approach for Effective Dancoff Factor Calculation," Proc. of the Inter. Conf. on the Nuclear Mathematical and Computational Sciences: A Century in Review, A Century Anew, M&C-2003, Gatlinburg, Tennessee, April 6-11 (2003).

Abstract – A procedure for the neutron flux determination in a neutron field with an arbitrary energy spectrum, based on the using of standard methods for the measurement of irradiated foils activity and on the application of the SCALE-4.4a code system for averaged cross section calculation is described in this paper. Proposed procedure allows to include the energy spectrum of neutron flux reestablished in the location of irradiated foils and the resonance self-shielding effects in the foils also. Example application of this procedure is given for the neutron flux determination inside the neutron filter with boron placed in the centre of heavy water critical assembly RB at the Vinča Institute.

DETERMINATION OF NEUTRON FLUX WITH AN ARBITRARY ENERGY DISTRIBUTION BY MEASUREMENT OF IRRADIATED FOILS ACTIVITY

Vladan Ljubenov, Miodrag Milošević